

⑨ 日本国特許庁 (JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A)

昭59—64733

⑪ Int. Cl.<sup>3</sup>  
C 22 C 19/07  
38/10  
H 01 F 1/04

識別記号

庁内整理番号  
7821—4K  
7147—4K  
7354—5E

⑬ 公開 昭和59年(1984)4月12日

発明の数 1  
審査請求 未請求

(全 8 頁)

⑭ 永久磁石

⑮ 特 願 昭57—166663

⑯ 出 願 昭57(1982)9月27日

⑰ 発 明 者 佐川真人

大阪府三島郡島本町江川2丁目

—15—17住友特殊金属株式会社

山崎製作所内

⑱ 発 明 者 藤村節夫

大阪府三島郡島本町江川2丁目

—15—17住友特殊金属株式会社  
山崎製作所内

⑲ 発 明 者 松浦裕

大阪府三島郡島本町江川2丁目

—15—17住友特殊金属株式会社

山崎製作所内

⑳ 出 願 人 住友特殊金属株式会社

大阪市東区北浜5丁目22番地

㉑ 代 理 人 弁理士 加藤朝道

明 細 書

1. 発明の名称

永久磁石

2. 特許請求の範囲

原子百分比において $R$  8～30% (但し $R$ は $Y$ を包含する希土類元素の少くとも一種)、 $U$  2～28%、 $Co$  50%以下 (但し $Co$  0%を除く)、及び残部 $Fe$ 及び不可避免の不純物から成る磁気異方性焼結体永久磁石。

3. 発明の詳細な説明

本発明は $Fe-U-R$ 系永久磁石においてその磁気特性の改良に関する。本発明において $R$ は希土類元素を示す記号として用いる。

永久磁石材料は一般家庭の各種電気製品から、大型コンピュータの周辺端末機まで、幅広い分野で使われるをわめて重要な電気・電子材料の一つである。近年の電気・電子機器の小型化、高効率化の要求にともない、永久磁石材料はますます高性能化が求められるようになった。

現在の代表的な永久磁石材料はアルニコ、ハ-

ドフェライトおよび希土類コバルト磁石である。最近のコバルトの原料事情の不安定化にともない、コバルトを20～30重量%含むアルニコ磁石の需要は減り、鉄の酸化物を主成分とする安価なハードフェライトが磁石材料の主流を占めるようになった。一方、希土類コバルト磁石はコバルトを50～65重量%も含むうえ、希土類磁石中にもあまり含まれていない $Sm$ を使用するため大変高価であるが、他の磁石に比べて、磁気特性が格段に高いため、主として小型で、付加価値の高い磁気回路に多く使われるようになった。

本発明者は、先に高価な $Sm$ や $Co$ を含まない新しい高性能永久磁石として $Fe-U-R$ 系の磁気異方性焼結体から成る永久磁石を見出し本願と同一出願人により出願された(特願昭57-145072)。この $Fe-U-R$ 系永久磁石は $Co$ を含まず、 $R$ として $Nd$ や $Pr$ を中心とする資源的に豊富な軽希土類を用い、 $Fe$ を主成分として25MGOeの極めて高いエネルギー積を示すことができることを示した点で優れたものである。この $Fe-U-R$ 系永久磁石

は従来のアルニコ磁石や希土類コバルト磁石に比して、より低いコストで高い特性を有する、即ち、より高いコストパフォーマンスを与えるのでそれ自体として大きな有用性を有する。

このFe・B・R系永久磁石のキュリー点は、特願昭57-145072に開示の通り一般に300℃前後、最高370℃である。このキュリー点は、従来のアルニコ系ないしR・Co系の永久磁石の約800℃のキュリー点と比べてかなり低いものである。かくて、Fe・B・R系永久磁石は、従来のアルニコ系やR・Co系磁石に比し磁気特性の温度依存性が大きく、高温においては磁気特性の低下が生ずる。

本発明は、上述の如く、Fe・B・R系磁石の温度特性を改良することを目的とする。本発明によればFe・B・R系磁石の主成分たるFeの一部をCoで置換することにより、生成合金のキュリー点を上昇せしめ、温度特性を改善することができる。本発明者等の研究の結果によれば、前述のFe・B・R系磁石は約100℃以上の温度で使用するとその

温度特性が劣化するため、約70℃以下の通常の温度範囲で使用することが適当であることが判明した。そのため、各種の実験及び検討の結果、FeのCoによる置換がFe・B・R系永久磁石の温度特性の改善に有効であることを見出したものである。

即ち、本発明によれば、原子百分比においてR 8~30%（但しRはYを包含する希土類元素の、少くとも一種）、B 2~28%、残部Fe及び不可避の不純物から成る磁気異方性結晶永久磁石において、FeをCoにより置換することにより合金組成中にCoを50%以下（原子百分比）含有せしめることにより温度特性を實質的に従来のアルニコ、RCo系磁石と同等程度に改善するものである。

本発明においてはCoを含有することによりFe・B・R系永久磁石の温度特性を改善する上さらにその他の利点を保持する。即ち、希土類元素Rとして資源的に豊富なNdやPrなどの軽希土類を用いて高い磁気特性を発現する。このため、本発明のCo置換Fe・B・R系磁石は、従来のRCo磁石と比較すると、資源的、価格のいずれの点におい

ても有利であり、磁気特性の上からもさらに優れたものが得られる。

一般に、Fe合金への、Coの添加の際Co添加量の増大に従いキュリー点(Tc)が上昇するものと下降するものと両方が認められている。そのためFeをCoで置換することは、一般的には複雑な結果を生じその結果の予測は困難である。例えばRFe<sub>2</sub>化合物のFeをCoで置換して行くとCo量の増大に伴いTcはまず上昇するがFeを1/2置換したR(Fe<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>)<sub>2</sub>付近で極大に達しその後低下してしまう。またFe<sub>2</sub>B合金の場合には、FeのCoによる置換によりTcは単調に低下する。

本発明による、Fe・B・R系におけるFeのCoによる置換においては、第1図に示す通り、Co置換量の増大に伴いTcは徐々に増大することが明らかとなつた。このFe・B・R系合金においては、Rの種類によらず同様な傾向が確認される。Coの置換量はわずかもTc増大に有効であり、第1図として例示する系(77-x)Fe・xCo・8B・15Ndにおいて明らかな通り、xの調整により

400~800℃の任意のTcをもつ合金が得られる。

本発明のCo置換Fe・B・R系永久磁石のR、B及び(Fe+Co)合金の組成は、基本的にFe・B・R系合金(Coを含まない系)の場合と同様である。即ち(以下%は合金中、原子百分比を示す)、保磁力Hc>1KOeを満たすためBは2%以上とし、ハードフェライトの残留磁束密度Br約4KG以上とするためRは28%以下とする。Rは、保磁力1KOe以上とするため8%以上必要であり、また燃え易く工業的取扱、製造上の困難のため(かつまた高価であるため)、30%以下とする(第2表参照)。

Rとしては資源的に豊富な軽希土類を用いることができ、必ずしもSmを必要とせず或いはSmを主体とする必要もないので原料が安価であり、きわめて有用である。

本発明の永久磁石に用いる希土類元素RはYを包含し、軽希土類及び重希土類を包含する希土類元素であり、そのうち一種以上を用いる。即ちこのRとしては、Nd, Pr, La, Ce, Tb, Dy, Ho,

Er, Eu, Sm, Gd, Dy, Tm, Yb, Lu 及び Y が含まれる。R としては、亜希土類をもつて足り、特に Nd, Pr が好ましい。また通例 R のうち一種をもつて足りるが、実用上は二種以上の混合物（ミッシュメタル、ジウム等）を入手上の便宜等の理由により用いることができる。なお、この R は純希土類元素でなくともよく、工業上入手可能な範囲で製造上不可避な不純物を含有するもので差支えない。

B（ホウ素）としては、純ホロン又はフェロボロンを用いることができ、不純物として Al, Si, C 等を含むものも用いることができる。

本発明の永久磁石体は、既述の 8 ~ 30 重量 % R、2 ~ 28 重量 % B、Co 50 重量 % 以下、残部 Fe（原子百分率）において、保磁力  $H_c \geq 1 \text{ KOe}$ 、残留磁束密度  $B_r > 4 \text{ KG}$  の磁気特性を示し、最大エネルギー積  $(BH)_{\max}$  はハードフェライト（~ 4 MGOe 程度）と同等以上となる。

亜希土類を R の主成分（即ち全 R 中亜希土類 50 原子 % 以上）とし、12 ~ 20 重量 % R、4 ~ 24 重量 %

B、5 ~ 45 重量 % Co、残部 Fe の組成は、最大エネルギー積  $(BH)_{\max} \geq 10 \text{ MGOe}$  及び残留磁束密度の温度係数  $\leq 0.1 \text{ \% / } ^\circ\text{C}$  を示し、好ましい範囲であり、最大エネルギー積  $(BH)_{\max}$  は最高 33 MGOe 以上に達する。

先に出現した Fe-B-R 系永久磁石は、磁気異方性焼結体として得られるが、本発明の Fe-Co-B-R 系永久磁石も同様な焼結体として得られる即ち、合金を溶解、鋳造し、鋳造合金を粉末化した後磁界中にて成形し焼結することにより永久磁石が得られる。

本発明の Co 添加 Fe-B-R 磁石は Co を含有しない Fe-B-R 三元磁石と比較して良好な温度特性を示し、 $B_r$  はほぼ同程度、 $H_c$  は同等或いは少し低いが Co 添加により角形性が改善されるため、 $(BH)_{\max}$  は同等か或いはそれ以上である。

又、Co は Fe に比べて耐食性を有するので、Fe-B-R 合金に Co を添加することにより耐食性を付与することも可能となる。

以下本発明を実施例に従つて説明する。但し、

この実施例は本発明をこれらに限定するものではない。

第 1 図に代表例として 77 Fe-8 B-15 Nd の Fe の一部を Co (x) で置換した系、 $(77-x) \text{ Fe} \cdot x \text{ Co} \cdot 8 \text{ B} \cdot 15 \text{ Nd}$  の x を 0 ~ 77 に変化させた場合の、キュリー点  $T_c$  の変化を示す。この試料はつぎの工程により作製した。

- (1) 合金を高周波溶解し、水冷銅鋳型に鋳造、出発原料は Fe として純度 99.9 重量 % の電解鉄、B 19.4 重量 % を含有し残部が Fe と Al, Si, C の不純物からなるフェロボロン合金、R として純度 99.7 重量 % 以上（不純物は主として他の希土類金属）を使用、Co は純度 99.9 重量 % の電解 Co を使用した。
- (2) 粉砕スタンプミルにより 35 メッシュ（300 μm）まで粗粉砕し、次いでボールミルにより 3 時間微粉砕（3 ~ 10 μm）。
- (3) 磁界（10 KOe）中配向、成形（1.5 T/cm<sup>2</sup> にて加压）
- (4) 焼結 1000 ~ 1200 °C で 1 時間 Ar 中焼結後冷却、焼結体から約 0.1 重量 % のブロックを切出し、VSM

により、次のようにして、キュリー点を測定した。すなわち、試料は 10 KOe の磁場を印加し、25 °C ~ 600 °C までの温度範囲で 4 π I の温度変化を測定し、4 π I がほぼ 0 になる温度をキュリー点  $T_c$  とした。

上記の系で Fe に対する Co 置換量の増大に伴い  $T_c$  は急速に増大し Co が 30 重量 % 以上では  $T_c$  は 600 °C 以上で測定され、測定限界温度以上に達する。

一般に永久磁石材料において、 $T_c$  の増大は磁気特性の温度変化の減少のための最も重要な要因とされている。この点の確認のため、 $T_c$  測定用試料と同じ工程により第 1 表の永久磁石試料を作製して、 $B_r$  の温度特性を測定した。

- (5)  $B_r$  の温度変化は次のようにして測定した。すなわち 25 °C、60 °C、100 °C の各温度で HMTレーサにより磁化曲線を測定し、25 ~ 60 °C と 60 ~ 100 °C における  $B_r$  の温度変化を平均した。

各種 Fe・B・R 系および Fe・Co・B・R 系磁石の Br の温度係数ならびに 2.5℃ における磁化曲線の測定結果を第 1 表に示す。

第 1 表から、Fe・B・R 磁石に Co を含有することにより、Br の温度変化が改善されることは明らかである。

第 1 表には各試料の室温における磁気特性も併記した。大部分の組成で、保磁力  $iH_c$  は Co 置換により低下するが、減磁曲線の角形性の向上により、 $(BH)_{max}$  は上昇する。しかし、Co 置換量が多くなると  $iH_c$  の低下が著しく、永久磁石材料として  $iH_c > 1 \text{ KOe}$  を得るために、Co 量は 50 以下とする。

B の下限、上限、R の下限について既述の理由が第 1 表から読み取れる。

第 1 表

| No | 原子百分率組成 (%)           | Br の温度係数 (%) | $iH_c$ (KOe) | Br (KG) | $(BH)_{max}$ (MG Oe) |
|----|-----------------------|--------------|--------------|---------|----------------------|
| C1 | Fe-2B-15Nd            | 0.14         | 1.0          | 9.6     | 4.0                  |
| C2 | Fe-8B-15Nd            | 0.14         | 7.3          | 12.1    | 32.1                 |
| C3 | Fe-17B-15Nd           | 0.15         | 7.6          | 8.7     | 17.6                 |
| C4 | Fe-17B-30Nd           | 0.16         | 14.8         | 4.5     | 4.2                  |
| C5 | Fe-20Co-15Nd          | -            | 0            | 0       | 0                    |
| C6 | Fe-10Co-19B-5Pr       | -            | 0            | 0       | 0                    |
| C7 | Fe-60Co-8B-15Nd       | 0.05         | 0.8          | 8.2     | 3.5                  |
| 8  | Fe-10Co-8B-15Nd       | 0.09         | 5.2          | 12.0    | 33.0                 |
| 9  | Fe-20Co-8B-15Nd       | 0.07         | 8.8          | 12.0    | 33.1                 |
| 10 | Fe-30Co-8B-15Nd       | 0.06         | 4.5          | 12.0    | 24.2                 |
| 11 | Fe-40Co-8B-15Nd       | 0.06         | 3.1          | 11.8    | 17.5                 |
| 12 | Fe-50Co-8B-15Nd       | 0.06         | 1.5          | 8.7     | 7.7                  |
| 13 | Fe-15Co-17B-15Nd      | 0.10         | 7.4          | 8.9     | 18.2                 |
| 14 | Fe-30Co-17B-15Nd      | 0.08         | 6.3          | 8.6     | 16.5                 |
| 15 | Fe-20Co-8B-10Tb3Ce    | 0.08         | 6.1          | 6.3     | 8.8                  |
| 16 | Fe-20Co-12B-14Pr      | 0.07         | 7.2          | 10.5    | 25.0                 |
| 17 | Fe-15Co-17B-8Nd5Pr    | 0.08         | 7.4          | 8.3     | 15.7                 |
| 18 | Fe-20Co-11B-7Sm9Pr    | 0.07         | 6.5          | 9.6     | 17.5                 |
| 19 | Fe-10Co-15B-8Nd7Y     | 0.09         | 6.0          | 7.5     | 11.0                 |
| 20 | Fe-10Co-14B-7Nd3Pr5La | 0.09         | 6.8          | 7.8     | 14.2                 |
| 21 | Fe-30Co-17B-28Nd      | 0.09         | 12.2         | 4.6     | 4.7                  |

(符号 C は比較例を示す)

第 1 表には、R として Nd, Pr, 等の主として軽希土類を用いたものを多数掲げてあるが、夫々高い磁気特性を示し、Fe の Co による置換によつてさらに温度特性が改善されている。R としては、2 種以上の希土類元素の混合物も有用であることが判る。尚表の試料 No. 15 は希土類元素が重希土類の混合物であるため、 $(BH)_{max}$  は多少低い。

次に Fe の一部を Co で置換した Fe・Co・B・R 系焼結磁石の代表例として 57Fe・20Co・8B・15Nd の室温における磁化曲線を第 2 図に示す。初磁化曲線 1 は低磁界で急峻に立上がり、飽和に達する。減磁曲線は極めて角形性が高く、本磁石は典型的な高性能異方性磁石であることを示している。初磁化曲線 1 の形は、本磁石の保磁力が反転磁区の核発生によつて決定される、いわゆるニュクリエーション型永久磁石であることを示す。なお、第 1 表に示す、比較例を除く他の試料はいずれも、第 2 図と同様な磁化曲線を示した。

以上詳述の通り、本発明の Fe・Co・B・R 系永久磁石は、R として軽希土類、特に各種の軽希土

類・重希土類の混合物、例えばミツシユメタルやジウムのように安価な R 原料を用いて高い磁気特性が得られ、かつ Co の含有量も重量百分率で 45 以下 (原子 % で 50 以下) で十分であり、Sm-Co 系磁石が 50 ~ 65 重量 % の Co を含有するのと比較すれば、Co を節約可能であり、温度特性は Fe・B・R 系磁石に比べて顕著に改善できた。

上記 Fe・Co・B・R 系永久磁石は <sup>Co</sup>Fe, B, R のほか、工業的製造上不可避な不純物の存在を許容できるが、さらに以下の展開も可能であり、一層実用性を高めることができる。即ち、B の一部を C, N, P, Si 等により置換することも可能であり、製造性改善、低価格化が可能となる。

さらに本発明の磁石に Al, Ti, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Zr, Nb, Mo, Ta, W, Sn, Bi, Sb の 1 種以上を添加することにより、高保磁力化が可能となり、また、Ni 添加により、耐食性改善も可能となる。

以上、本発明は Fe・Co・B・R 系永久磁石で残留磁化・高保磁力・高エネルギー積を付し、かつ、残留磁化の温度特性のすぐれた磁気異方性焼

結晶永久磁石を實現したもので、工業的にきわめて高い価値をもつものである。

#### 4. 図面の簡単な説明

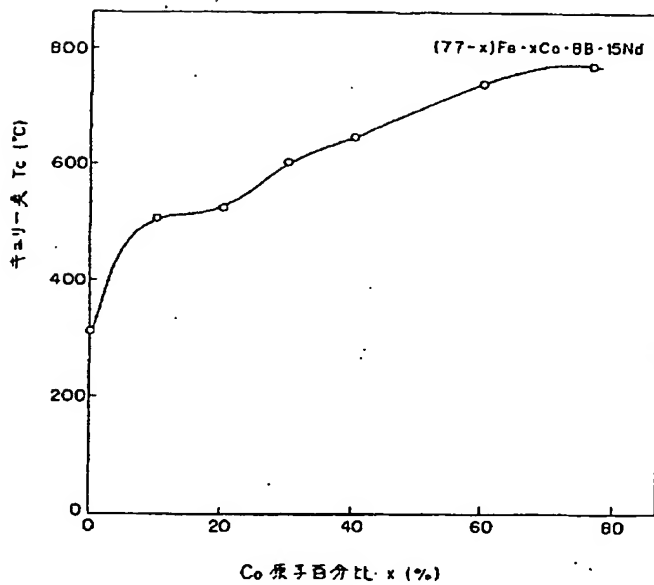
第1図は、本発明の一実施例についてキュリー点とCo量との関係を示すグラフ（但し横軸xはCoの原子百分比）。

第2図は、他の一実施例の室温における磁化曲線を示す（初磁化曲線1、減磁曲線2、縦軸は磁化 $4\pi I$  (KG)、横軸は磁界 $H$  (KOe)）。

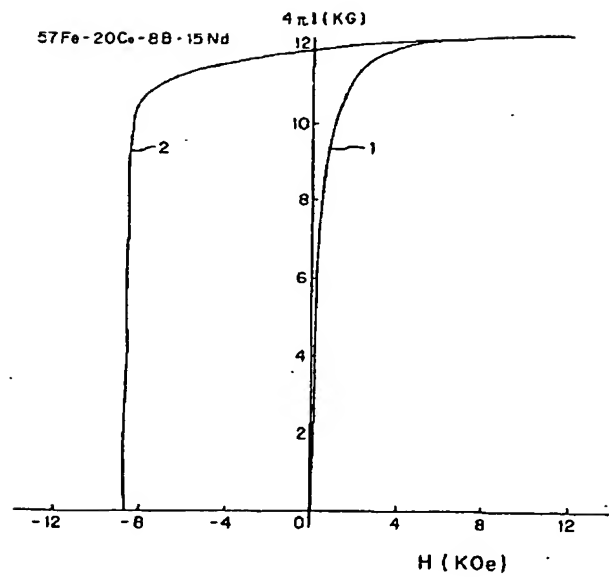
出 願 人 住友特殊金属株式会社

代 理 人 弁 理 士 加 藤 朝 道

第 1 図



第 2 図



昭和58年10月28日

特許庁長官 若杉 和夫 殿

## 1 事件の表示

昭和57年特許願第166663号

(昭和57年9月27日 出願)

## 2 発明の名称

永久磁石

## 3 補正をする者

事件との関係 特許出願人

氏名 住友特殊金属株式会社

## 4 代理人

住所 〒116 東京都港区西新島1丁目12番6号

氏名

(8081) 弁護士 加藤 朝道

## 5 補正命令の日付

自発

## 6 補正により増加する発明の数

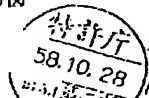
なし

## 7 補正の対象

明細書の発明の詳細な説明、図面の簡単な説明の欄ならびに図面の第3図、第4図及び第5図

## 8 補正の内容

酒紙の通り



9) 第8頁1行、「5~45%」を「45%以下の」に訂正する。

10) 同頁2~3行「及び残留酸素密度の温度係数 $\leq 0.1\%/^{\circ}\text{C}$ 」を削除する。

11) 同頁5行末尾に次文を加入する。「Coは5%以上でBrの温度係数約 $0.1\%/^{\circ}\text{C}$ 以下を示し、25%以下で他の磁気特性を実質的に著うことなくTc増大に寄与する。」

12) 同頁9行「铸造し」を「冷却（例えば铸造）し」とし、同行「铸造合金」を「生成合金」に訂正する。

13) 同頁13行「三元系」を「三元系」に訂正する。

14) 第9頁13行末尾に「なお純度は重量%で示す。」を追加する。

15) 第12頁第1表のNo.18の組成中「75m9Pr」を「3Sm13Pr」に訂正する。

16) 第13頁15行「ニユクリ」を「ニユクリ」に訂正する。

17) 第13頁18行末尾に次文を挿入する。

特開昭59-64733(8)

1. 明細書の発明の詳細な説明の欄を次の通り補正する。

1) 明細書第4頁9行、「成る」を「本質上成る」に訂正する。

2) 5頁18行「わずか」の次に「（例えば0.1%~1%）」を挿入する。

3) 第6頁6行「>」を「 $\geq$ 」に訂正する。

4) 同頁12行「（第2表参照）」を削除する。

5) 第7頁2行、「をもつて足り、」を「が好ましく、」に訂正する。

6) 第7頁6行、「用いることができる。」を「用いることができ、Sm、Y、La、Ce、Cd等は他のR、特にNd、Pr等との混合物として用いることができる。」に訂正する。

7) 同頁8行「不純物」の次に「（他の希土類元素、Ca、Mg、Fe、Ti、C、O等）」を挿入する。

8) 同頁16行、「 $\text{Br} > 4 \times \text{G}$ 」を「 $\text{Br} \geq 4 \times \text{G}$ 」に訂正する。

「前述の工程と同様にして製造した試料により、 $\text{Fe}-10\text{Co}-8\text{B}-x\text{Nd}$ の系においてxを0~4.0に変化させてNd量とBr、 $i\text{Hc}$ との関係調べた。その結果を第3図に示す。さらに、 $\text{Fe}-10\text{Co}-x\text{B}-15\text{Nd}$ の系においてxを0~3.5に変化させてBr量とBr、 $i\text{Hc}$ との関係調べ、その結果を第4図に示す。」

18) 第13頁16行、「ことを示す。」を「ことが推察される。」に訂正する。

19) 第13頁18行と19行の間に次文を挿入する。

「さらに、同様の工程により、 $\text{Fe}-\text{Co}-\text{B}-\text{R}$ 四成分系において、一例として $\text{Fe}-5\text{Co}-\text{B}-\text{Nd}$ 系についてFe、Co、Nd三成分を変化させて磁気特性を調べ、その結果を(BH)maxについて第5図に示す。」

20) 第14頁9行、「工業的」をCu、C、S、P、Ca、Mg、O、Si、Al等工業的」に訂正する。

21) 同頁10行、「できるが、」を「できる。」  
これらの不純物は、原料或いは製造工程から混入することが多く、磁石合金中にCu、P各3.5%以下、C、Ca、Mg各4%以下、S 2.0%以下、O 2%以下、Si 5%以下、Al約1%以下合計5%以下は許容され、」に訂正し、「さらに以下の展開も可能であり、」を削除する。

22) 同頁11行-13行「即ち、...となる。」を削除する。

23) 同頁14行、「Cu」を「Ni」に訂正する。

24) 同頁15行「Zn」を「Ge、Hf」に訂正する。

II. 明細書の図面の簡単な説明の欄を次の通り補正する。

明細書第15頁9行末地に次文を挿入する。

「第3図はFe-10Co-8B-xNd系において、Nd量(横軸原子%)としiHc、Brの関係を示すグラフ、」

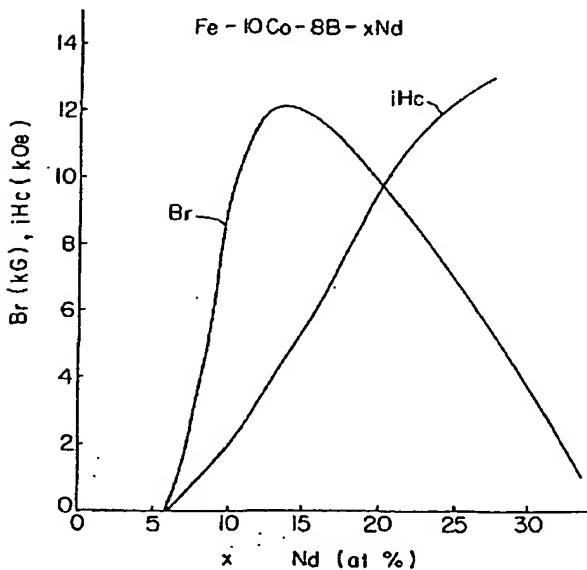
第4図は、Fe-10Co-xB-15Nd系において、B量(横軸原子%)としiHc、Brの関係を示すグラフ、

第5図は、Fe-5Co-B-Nd系において、Fe-B-R三成分の組成と(BH)<sub>max</sub>の関係を示す三成分系グイアグラムを、示す。」

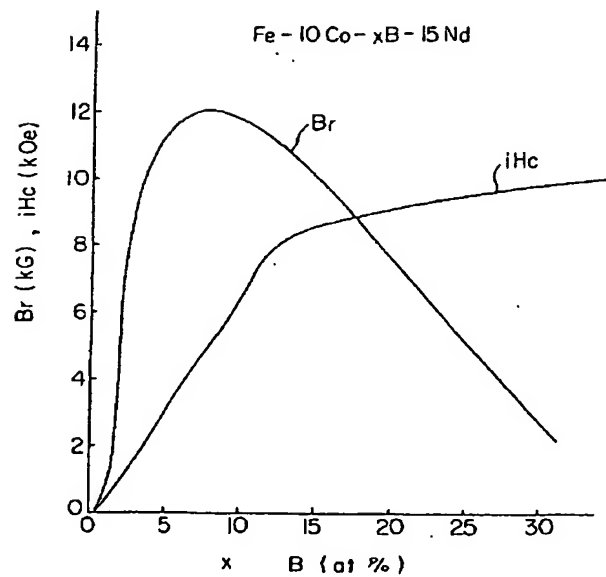
III. 図面の別添(新)第3図、第4図、第5図を追加する。

以上

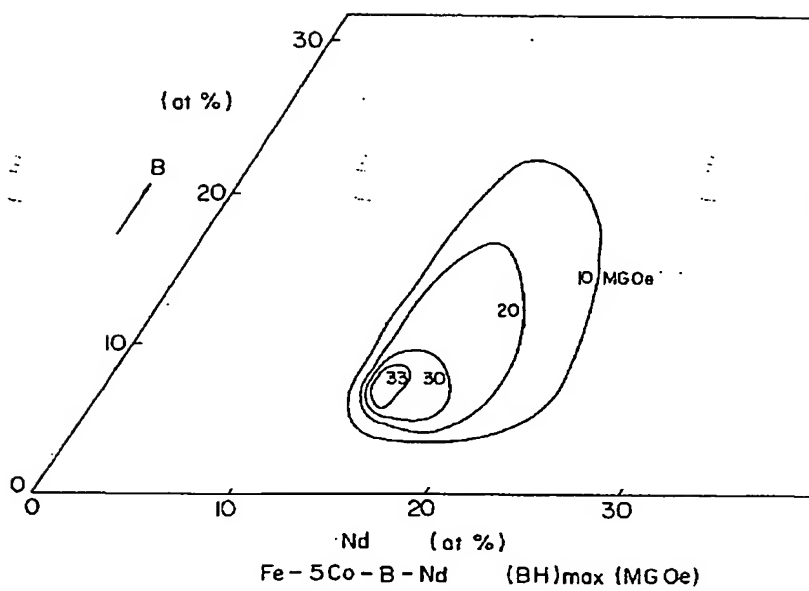
第 3 図



第 4 図



第 5 図





特許法第17条の2の規定による補正の掲載

手続補正書

昭和 57 年特許願第 166663 号 (特開 昭 59- 64733 号, 昭和 59 年 4 月 12 日 発行 公開特許公報 59- 648 号掲載) については特許法第17条の2の規定による補正があったので下記のとおり掲載する。 3. (4)

昭和 62 年 12 月 14 日

特許庁長官 小川 邦夫 殿

| Int. Cl.   | 識別記号 | 庁内整理番号  |
|------------|------|---------|
| C22C 19/07 |      | 7730-4K |
| 38/10      |      | 7147-4K |
| H01F 1/04  |      | 7354-5E |

1 事件の表示

昭和 57 年特許願第 166663 号

(昭和 57 年 9 月 27 日出願)

2 発明の名称

永久磁石

3 補正をする者

事件との関係 特許出願人

名称 住友特殊金属株式会社

4 代理人

住所 〒105 東京都港区西新橋 1 丁目 12 番 8 号

西新橋中ビル 5 階

電話 (03) 508-0295

氏名 (8081) 弁理士 加藤 朝

5 補正により増加する発明の数 1

6 補正の対象

(1) 明細書全文

(2) 図面 (第 3 ~ 5 図)

7 補正の内容

(1) 明細書全文を添付の全文訂正明細書に補正する。

(2) 第 3 ~ 5 図を、夫々、添付の訂正図面に補正する

(各試料の「Fe 量」を明確にしたものであり、

実体に変更はない)。

方式  
審査

二  
五

特許  
62.12.14  
印刷第二

明 細 書 (全文訂正)

1. 発明の名称

永久磁石

2. 特許請求の範囲

(1) 原子百分比で、希土類元素 (R) として Nd, Pr, Dy, Ho, Tb のうち少なくとも一種 8 ~ 30%, B 2 ~ 28% 及び残部実質的に Fe からなる Fe-B-R 系磁気異方性焼結体永久磁石において、前記 Fe の一部を全組成に対して 50% 以下 (0% を除く) の Co で置換したことを特徴とする永久磁石。

(2) 原子百分比で、前記希土類元素 (R) 12 ~ 20% (但し前記希土類元素 (R) の 50% 以上は Nd と Pr の 1 種又は 2 種), B 4 ~ 24% 及び残部実質的に Fe からなり、前記 Fe の一部を全組成に対して 45% 以下の Co で置換したことを特徴とする特許請求の範囲第 1 項記載の永久磁石。

(3) 原子百分比で、希土類元素 (R) として Nd, Pr, Dy, Ho, Tb のうち少なくとも

一種と La, Ce, Pm, Sm, Eu, Gd, Er, Tm, Yb, Lu, Y のうち少なくとも一種の合計 8 ~ 30%, B 2 ~ 28% 及び残部実質的に Fe からなる Fe-B-R 系磁気異方性焼結体永久磁石において、前記 Fe の一部を全組成に対して 50% 以下 (0% を除く) の Co で置換したことを特徴とする永久磁石。

(4) 原子百分比で、前記希土類元素 (R) 12 ~ 20% (但し前記希土類元素 (R) の 50% 以上は Nd と Pr の 1 種又は 2 種), B 4 ~ 24% 及び残部実質的に Fe からなり、前記 Fe の一部を全組成に対して 45% 以下の Co で置換したことを特徴とする特許請求の範囲第 3 項記載の永久磁石。

3. 発明の詳細な説明

本発明は、一般家庭の各種電気製品から、大型コンピュータの周辺端末機まで、幅広い分野で使われるきわめて重要な電気・電子材料の一つである永久磁石の改良に係り、特に Co 添加 Fe-B-R 系永久磁石に関する。

近年の電気、電子機器の小型化、高効率化の要

求にともない、永久磁石はますます高性能化が求められるようになった。

現在の代表的な永久磁石はアルニコ、ハードフェライト及び希土類コバルト磁石である。最近のコバルトの原料事情の不安定化にともない、コバルトを20～30重量%含むアルニコ磁石の需要は減り、鉄の酸化物を主成分とする安価なハードフェライトが磁石材料の主流を占めるようになった。一方、希土類コバルト磁石はコバルトを50～65重量%も含むうえ、希土類鉱石中にあまり含まれていないSmを使用するため大変高価であるが、他の磁石に比べて、磁気特性が格段に高いため、主として小型で、付加価値の高い磁気回路に多く使われるようになった。

希土類コバルト磁石は $RCo_5$ 、 $R_2Co_{17}$  (RはSm、Ceを中心とする希土類元素) にて示される2元素化合物をベースとする永久磁石であり、Coの一部を少量のCu、Feの他Zr、Ti、V、Hf等の遷移金属元素にて置換することによって磁気特性の向上が図られてきたもので

クロートは軽希土類鉄合金は低コスト永久磁石の魅力的な候補として長い間考えられてきたが、これら合金を粉末冶金法によって磁気的に硬化する試みは成功しなかったことを報告するとともに、 $Pr-Fe$ 及び $Nd-Fe$ 合金が溶融紡糸(超急冷)によって磁気的に硬化され得ることを見出したと報告している(J. J. Croat: J. Appl. Phys. 53 (4), April 1982, 3161頁)。

希土類を用いた磁石がもっと広い分野で安価に、かつ多量に使われるようになるためには、高価なコバルトを含まず、かつ希土類金属として、鉱石中に多量に含まれている軽希土類を主成分とすることが必要とされよう。

一方既述のように $R-Fe$ ないし $R-Fe-B$ 合金を磁性材料として有用化するためには、スパッタ薄膜化又は超急冷ないしアモルファス化が不可欠であるとされている。

しかし、これらのスパッタ薄膜又は超急冷リボンからは任意の形状・寸法を有するバルク状の実用永久磁石を得ることができなかった。これまで

ある。

他方近時、コバルトを含まない磁性材料としてFeとR(以下本発明においてRは希土類元素を示す符号として用いる)を主成分とするスパッタ薄膜又は超急冷リボンの磁性材料が提案されている。例えば、クラークによるスパッタした薄膜アモルファス $TbFe_2$ 、 $DyFe_2$ 、 $SmFe_2$ 合金の磁気特性が報告されている(A. E. Clark: Appl. Phys. Lett. vol. 23 No. 11 1 December 1973 642～644頁)。また超急冷リボンの磁性材料としてクロートによる $PrFe$ 系合金(J. J. Croat: Appl. Phys. Lett. 37 (12), 15 December 1980 1098～1098頁)があり、さらにクーン等による $(Fe_{0.82}B_{0.18})_{0.9}Tb_{0.05}La_{0.05}$ 合金(N. C. Koon 他: Appl. Phys. Lett. 39 (10), 15 November 1981, 840～842頁)、カバコフ等による $(Fe_{0.8}B_{0.2})_{1-x}Pr_x$  ( $x=0\sim0.3$ 原子比)合金(L. Kabakoff 他: J. Appl. Phys. 53 (3), March 1982, 2255～2257頁)等が報告されている。さらに前記

に報告された $Fe-B-R$ 系リボンの磁化曲線は角形性が強く、従来慣用の磁石に対抗できる実用永久磁石とはみなされえない。また、上記スパッタ薄膜及び超急冷リボンは、いずれも本質上等方性であり、これらから磁気異方性の実用永久磁石を得ることは、事実上不可能であった。

本発明は、このような要請に応えるべき新規な実用高性能永久磁石を提供することを基本目的とする。特に、本発明は、室温以上で良好な磁気特性を有し、任意の形状・実用寸法に成形でき、磁化曲線の角形性が高く、さらに磁気異方性を有する実用永久磁石であって、しかもRとして資源的に豊富な軽希土類元素を有効に使用できるものを得ることを目的とする。

このような永久磁石として、本発明者は、先に、Nd、Prを中心とする特定の希土類元素とFeとBとを特定比をもって必須とし、かつ磁気異方性焼結体である、全く新しい種類の実用高性能永久磁石を開発し、本願と同一出願人により出願した(特願昭57-145072)。この $Fe-B$

-R 3 元系磁石は、従来知られている  $RCO_5$  や  $R_2CO_{17}$  化合物とは異なる新しい化合物を基礎とし、粉末冶金法にて適当なミクロ組織を形成することによって得られる磁気異方性焼結永久磁石であり、特にボロン (B) は、従来の、例えば非晶質合金作成時の非晶質促進元素又は粉末冶金法における焼結促進元素として添加されるものではなく、この Fe-B-R 系永久磁石の実体的内容を構成する磁氣的に安定で高い磁気異方性定数を有する R-Fe-B 化合物の必須構成元素であることを明らかにした。

上述の Fe-B-R 系磁気異方性焼結永久磁石は必ずしも Co を含む必要がなく、また R としては好適な実施態様として資源的に豊富な Nd, Pr を主体とする軽希土類を用いることができ、必ずしも Sm を必要とせず或いは Sm を主体とする必要もないので原料が安価であり、きわめて有用である。しかも、磁気特性はハードフェライト磁石以上の特性を有し (保磁力  $H_c \geq 1 \text{ kOe}$ 、残留磁束密度  $B_r \geq 4 \text{ kG}$ 、最大エネルギー積  $(BH)_{\max}$

$\geq 4 \text{ MGOe}$ ) 特に好ましい組成範囲においては希土類コバルト磁石と同等以上の極めて高いエネルギー積を示すことができる。

以上の通りこの Fe-B-R 系永久磁石は磁気異方性に基づく高磁気特性、任意成形性、資源的により豊富な材料を用いることができる等の点で高いコストパフォーマンスを有し、R-Co 系磁石にも代わり得る工業上極めて有用なものであるが、一方、この Fe-B-R 系永久磁石のキュリー点 (温度) は、特願昭 57-145072 に開示の通り一般に 300℃ 前後、最高 370℃ である。このキュリー点は、従来のアルニコ系ないし R-Co 系の永久磁石の約 800℃ のキュリー点と比べてかなり低いものである。従って、Fe-B-R 系永久磁石は、従来のアルニコ系や R-Co 系磁石に比して磁気特性の温度依存性が大であり、高温においては磁気特性の低下が生ずる。本発明者の研究の結果によれば、Fe-B-R 系焼結磁石は約 100℃ 以上の温度で使用するとその温度特性が劣化するため、約 70℃ 以下の通常の温度範囲で使用

することが適当であることが判明した。

この様に永久磁石にとって磁気特性の温度依存性が高い、即ちキュリー点が低いことはその使用範囲が狭められることとなり、Fe-B-R 系永久磁石を広範囲の用途に使用するためにはキュリー点を上昇せしめ、温度特性を改善することが必要であった。

本発明は、かかる Fe-B-R 系磁石において、その温度特性を改良することを併せて目的とする。

本発明者は、各種の実験及び検討の結果、Fe の Co による置換が Fe-B-R 系永久磁石の温度特性の改善に有効であることを見出した。即ち、本発明の永久磁石は次の通りである。

本願の第 1 発明：原子百分比で、希土類元素 (R) として Nd, Pr, Dy, Ho, Tb のうち少なくとも一種 8~30%、B 2~28% 及び残部実質的に Fe からなる Fe-B-R 系磁気異方性焼結体永久磁石において、前記 Fe の一部を全組成に対して 50% 以下 (0% を除く) の Co で置換

したことを特徴とする永久磁石。

本願の第 2 発明：原子百分比で、希土類元素 (R) として Nd, Pr, Dy, Ho, Tb のうち少なくとも一種と La, Ce, Pm, Sm, Eu, Gd, Er, Tm, Yb, Lu, Y のうち少なくとも一種の合計 8~30%、B 2~28% 及び残部実質的に Fe からなる Fe-B-R 系磁気異方性焼結体永久磁石において、前記 Fe の一部を全組成に対して 50% 以下 (0% を除く) の Co で置換したことを特徴とする永久磁石。

一般に、Fe 合金への Co の添加の際、Co 添加量の増大に従いキュリー点 (Tc) が上昇するものと下降するものと両方が認められている。そのため、Fe を Co で置換することは、一般的には複雑な結果を生じ、その結果の予測は困難である。例えば、 $RFe_3$  化合物の Fe を Co で置換して行くと、Co 量の増大に伴い Tc はまず上昇するが、Fe を 1/2 置換した  $R(Fe_{0.5}Co_{0.5})_3$  付近で極大に達し、そ

の後低下してしまう。また  $Fe_2B$  合金の場合には、 $Fe$  の  $Co$  による置換により  $T_c$  は単調に低下する。

$Fe-B-R$  系における  $Fe$  の  $Co$  による置換においては、第 1 図に示す通り、 $Co$  置換量の増大に伴い  $T_c$  は当初急速に増大し、以後徐々に増大することが明らかとなった。この  $Fe-B-R$  系合金においては、 $R$  の種類によらず同様な傾向が確認される。 $Co$  の置換量はわずか（例えば 0.1~1 原子%）でも  $T_c$  増大に有効であり、第 1 図として例示する系  $(77-x) Fe-x Co-8 B-15 Nd$  において明らかな通り、 $x$  の調整により 400~800℃ の任意の  $T_c$  をもつ合金が得られる。かくて本発明は、新規な  $Fe-B-R$  化合物をベースとした  $Fe-B-R$  系磁気異方性焼結永久磁石の  $Fe$  の一部を  $Co$  で置換することにより合金組成中に  $Co$  を 50% 以下含有せしめ、 $(Fe, Co)-B-R$  化合物をベースとした  $Fe-Co-B-R$  系永久磁石を提供するものである。

本発明において必須元素のうち  $B$ 、 $R$  の含有量は基本的に  $Fe-B-R$  系永久磁石（ $Co$  を含まない系）の場合と同様である。即ち（以下%は合金中、原子百分率を示す）、保磁力  $H_c \geq 1 kOe$  を満たすために  $B$  は 2% 以上とし、ハードフェライトの残留磁束密度  $Br$  約 4 kG 以上とするために  $B$  は 28% 以下とする。 $R$  は、保磁力 1 kOe 以上とするために 8% 以上必要であり、また燃え易く工業的取扱、製造上の困難のため（かつまた高価であるため）、30% 以下とする。

本発明の永久磁石に用いる希土類元素  $R$  は  $Y$  を包含し、軽希土類及び重希土類を包含する希土類元素であり、そのうち所定の一種以上を用いる。即ちこの  $R$  としては、 $Nd$ 、 $Pr$ 、 $La$ 、 $Ce$ 、 $Tb$ 、 $Dy$ 、 $Ho$ 、 $Er$ 、 $Eu$ 、 $Sm$ 、 $Gd$ 、 $Pm$ 、 $Tm$ 、 $Yb$ 、 $Lu$  及び  $Y$  が包含される。 $R$  としては、 $Nd$ 、 $Pr$  を主体とする軽希土類（特に  $Nd$ 、 $Pr$ ）が好ましい。通例  $R$  のうち所定のもの一種をもって足りる（ $Nd$ 、 $Pr$ 、 $Dy$ 、 $Ho$ 、 $Tb$  等）が、 $La$ 、 $Ce$ 、 $Pm$ 、 $Sm$ 、

本発明によれば、 $Co$  を含有することにより  $Fe-B-R$  系永久磁石の温度特性を實質的に従来のアルニコ磁石、 $R-Co$  系磁石と同等程度に改善する上、さらにその他の利点を保持する。

即ち、特に希土類元素  $R$  として資源的に豊富な  $Nd$  や  $Pr$  などの軽希土類を用いた場合、従来の  $R-Co$  系磁石と比較すると、資源的、價格的いずれの点においても有利であり、磁気特性の上からもさらに優れたものが得られる。

また、本発明の  $Co$  添加  $Fe-B-R$  系永久磁石は  $Co$  を含有しない  $Fe-B-R$  系永久磁石と比較して  $Br$  はほぼ同程度、 $H_c$  は同等或いは少し低いが  $Co$  添加により角形性が改善されるため、かなりの範囲で  $(BH)_{max}$  は同等か或いはそれ以上とすることが可能である。さらに、 $Co$  は  $Fe$  に比べて耐食性を有するので、 $Fe-B-R$  系永久磁石と比較して  $Co$  を添加することにより耐食性を付与することも可能となる。

かくて、本発明は工業上極めて有用な新規な実用高性能永久磁石を提供できる。

$Eu$ 、 $Gd$ 、 $Er$ 、 $Tm$ 、 $Yb$ 、 $Lu$ 、 $Y$  等は他の  $R$ 、特に  $Nd$ 、 $Pr$ 、 $Dy$ 、 $Ho$ 、 $Tb$ （一種以上）との混合物として用いることができる。実用上は二種以上の混合物（ミッシュメタル、ジウム等）を入手上の便宜等の理由により用いることができる。 $Sm$ 、 $La$ 、 $Er$ 、 $Tm$ 、 $Ce$ 、 $Gd$ 、 $Y$  は単独では  $H_c$  が低いため好ましくなく、 $Eu$ 、 $Pm$ 、 $Yb$ 、 $Lu$  は微量にしか存在せず高価である。従ってこれらの希土類元素は、前述の通り、 $Nd$ 、 $Pr$  等の他の  $R$  との混合物として用いることができる。なお、この  $R$  は純希土類元素でなくともよく、工業上入手可能な範囲で製造上不可避な不純物（他の希土類元素、 $Ca$ 、 $Mg$ 、 $Fe$ 、 $Ti$ 、 $C$ 、 $O$  等）を含有するもので差支えない。

$B$ （ホウ素）としては、純ボロン又はフェロボロンを用いることができ、不純物として  $Al$ 、 $Si$ 、 $C$  等を含むものも用いることができる。

残部は實質的に  $Fe$  と  $Co$  からなり、本発明の特徴とする  $Co$  の置換量は、後述する磁気特性等

の要求に応じて適宜選択することが望ましい。

本発明永久磁石はFe, Co, B, Rの外, C, S, P, Ca, Mg, O, Si, Al等工業的に製造上不可避な不純物の存在を許容できる。これらの不純物は, 原料或いは製造工程から混入することが多く, 合計は5%以下とすることが好ましい。又, Al, Ti, V, Cr, Mn, Zn, Zr, Nb, Mo, Ta, W, Sn, Bi, Sbの一種以上を添加することにより高保磁力化が可能となり, 又Ni添加により, 耐食性改善も可能となる。

本発明のFe-Co-B-R系永久磁石は, 既述のR, 即ちNd, Pr, Dy, Ho, Tbのうち少なくとも一種, 又はこれらNd, Pr, Dy, Ho, Tbのうち少なくとも一種とLa, Ce, Pm, Sm, Eu, Gd, Er, Tm, Yb, Lu, Yのうち少なくとも一種の合計8~30%, 2~28%B, Co50%以下, 残部Feにおいて保磁力  $1Hc \geq 1 \text{ kOe}$ , 残留磁束密度  $Br \geq 4 \text{ kG}$  の磁気特性を示し, 最大エネルギー積  $(BH)_{\max}$  は

ハードフェライト ( $\sim 4 \text{ MGOe}$ 程度) と同等以上となる。

さらに, RとしてNd, PrをRの主成分(即ち全R中Nd, Prの1種以上が50%以上)とし, 12~20%R, 4~24%B, 45%以下Co, 残部Feの組成は, 最大エネルギー積  $(BH)_{\max} \geq 10 \text{ MGOe}$ を示し, 特にCoが35%以下では最大エネルギー積  $(BH)_{\max}$  は20MGOe以上となり, 最高33MGOe以上に達する。又Coは5%未満でもTc増大に寄与し, 特に5%以上ではBrの温度係数約0.1%/℃以下を示し, 25%以下で他の磁気特性を実質的に損うことなくTc増大に寄与する。

本発明のFe-Co-B-R系永久磁石も, 先に出願したFe-B-R系永久磁石と同様な磁気異方性焼結体として得られる。典型的には, 合金を溶成, 冷却(例えば鋳造)し, 生成合金を粉末化した後, 磁界中にて成形し焼結することにより本発明の永久磁石を得ることができる。

#### <実施例>

以下本発明を実施例に従って説明する。但し,

この実施例は本発明をこれらに限定するものではない。

第1図に代表例として77Fe-8B-15NdのFeの一部をCo(x)で置換した系, (77-x)Fe-xCo-8B-15Ndのxを0~77に変化させた場合のキュリー点Tcの変化を示す。この試料は次の工程により作製した。

#### (1) 合金を高周波溶解し水冷銅鋳型に鋳造,

出発原料はFeとして純度99.9%の電解鉄, Bとしてフェロボロン合金(19.38%B, 5.32%Al, 0.74%Si, 0.03%C, 残部Fe), Rとして純度99.7%以上(不純物は主として他の希土類元素)を使用。Coは純度99.9%の電解Coを使用した。なお純度は重量%で示す;

#### (2) 粉碎 スタンプミルにより35メッシュスルーまで粗粉碎し, 次いでボールミルにより3時間微粉碎(3~10 $\mu$ m);

#### (3) 磁界(10kOe)中配向, 成形(1.5t/cm<sup>2</sup>にて加圧);

#### (4) 焼結 1000~1200℃1時間Ar中, 焼結後放

冷。

焼結体から約0.1gのブロック(多結晶)を切出し, VSMにより次のようにしてキュリー点を測定した。即ち, 試料には10kOeの磁界を印加し, 25℃~600℃までの温度範囲で4 $\pi$ Iの温度変化を測定し, 4 $\pi$ Iがほぼ0になる温度をキュリー点Tcとした。

上記の系でFeに対するCo置換量の増大に伴いTcは急速に増大し, Coが30%以上ではTcは600℃以上に達する。

一般に永久磁石材料において, Tcの増大は磁気特性の温度変化の減少のための最も重要な要因とされている。この点の確認のため, Tc測定用試料と同じ工程により第1表の永久磁石試料を作製して, Brの温度特性を次のように測定した。即ち25℃, 60℃, 100℃の各温度でBHトレースにより磁化曲線を測定し, 25~60℃と60~100℃におけるBrの温度変化を平均した。各種Fe-B-R系及びFe-Co-B-R系磁石のBr温度係数の測定結果を第1表に示す。

第 1 表から、Fe-B-R 系磁石に Co を含有することにより、Br の温度変化が改善されることは明らかである。

第 1 表には各試料の室温における磁気特性も併記した。大部分の組成で、保磁力  $1H_c$  は Co 置換により低下するが、磁化曲線の角形性の向上により、 $(BH)_{max}$  は上昇する。しかし、Co 置換量が多くなると  $1H_c$  の低下が著しく、永久磁石材料として、 $1H_c \geq 1 \text{ kOe}$  を得るために、Co 量は 50% 以下とする。

B の下限、上限、R の下限について既述の限定理由が第 1 表から（さらに第 3、4 図から）確かめられる。

（以下余白）

第 1 表

| No | 原子百分率組成 (%)             | Br の温度係数 (%/°C) | $1H_c$ (kOe) | Br (kG) | $(BH)_{max}$ (kOe) |
|----|-------------------------|-----------------|--------------|---------|--------------------|
| C1 | Fe-2B-15Nd              | 0.14            | 1.0          | 9.6     | 4.0                |
| C2 | Fe-8B-15Nd              | 0.14            | 7.3          | 12.1    | 32.1               |
| C3 | Fe-17B-15Nd             | 0.15            | 7.6          | 8.7     | 17.6               |
| C4 | Fe-17B-30Nd             | 0.16            | 14.8         | 4.5     | 4.2                |
| C5 | Fe-20Co-15Nd            | —               | 0            | 0       | 0                  |
| C6 | Fe-10Co-19B-5Pr         | —               | 0            | 0       | 0                  |
| C7 | Fe-60Co-8B-15Nd         | 0.05            | 0.8          | 8.2     | 3.5                |
| 8  | Fe-10Co-8B-15Nd         | 0.09            | 5.2          | 12.0    | 33.0               |
| 9  | Fe-20Co-8B-15Nd         | 0.07            | 8.8          | 12.0    | 33.1               |
| 10 | Fe-30Co-8B-15Nd         | 0.08            | 4.5          | 12.0    | 24.2               |
| 11 | Fe-40Co-8B-15Nd         | 0.06            | 3.1          | 11.8    | 17.5               |
| 12 | Fe-50Co-8B-15Nd         | 0.06            | 1.5          | 8.7     | 7.7                |
| 13 | Fe-15Co-17B-15Nd        | 0.10            | 7.4          | 8.9     | 18.2               |
| 14 | Fe-30Co-17B-15Nd        | 0.08            | 6.3          | 8.6     | 16.5               |
| 15 | Fe-20Co-8B-10Tb-3Ce     | 0.08            | 6.1          | 6.3     | 8.8                |
| 16 | Fe-20Co-12B-14Pr        | 0.07            | 7.2          | 10.5    | 25.0               |
| 17 | Fe-15Co-17B-8Nd-5Pr     | 0.08            | 7.4          | 8.3     | 15.7               |
| 18 | Fe-20Co-11B-3Sm-13Pr    | 0.07            | 6.5          | 9.6     | 17.5               |
| 19 | Fe-10Co-15B-8Nd-7Y      | 0.09            | 6.0          | 7.5     | 11.0               |
| 20 | Fe-10Co-14B-7Nd-3Pr-5La | 0.09            | 6.8          | 7.8     | 14.2               |
| 21 | Fe-30Co-17B-28Nd        | 0.09            | 12.2         | 4.6     | 4.7                |
| 22 | Fe-10Co-10B-12Nd-5Dy    | 0.10            | 7.8          | 10.1    | 20.1               |
| 23 | Fe-10Co-10B-12Nd-5Ho    | 0.09            | 7.2          | 10.3    | 19.6               |
| 24 | Fe-5Co-8B-15Nd          | 0.10            | 6.8          | 12.1    | 33.1               |

（符号 C は比較例を示す）

第1表には、RとしてNd, Pr等の主として軽希土類を用いたものを多数掲げてあるが、夫々高い磁気特性を示し、FeのCoによる置換によってさらに温度特性が改善されている。Rとしては、2種以上の希土類元素の混合物も有用であることが判る。

更に得られた焼結体(第1表NaC2, Na8, Na24)を80℃、相対湿度90%の恒温恒湿槽に200時間置き、酸化による重量変化を測定した処、本発明に係る試料(Na8, Na24)はCoを含まない試料(NaC2)に比べて重量増加の割合が著しく低く、又Coの添加量に応じてその効果が顕著に認められた。

次にFeの一部をCoで置換したFe-Co-B-R系統焼結磁石の代表例として51Fe-20Co-8B-15Ndの室温における磁化曲線を第2図に示す。初磁化曲線1は低磁界で急峻に立上がり、飽和に達する。減磁曲線は極めて角形性が高く、本発明磁石は典型的な高性能異方性磁石であることを示している。初磁化曲線1の形から推察

として軽希土類、特にNd, Prを中心とする軽希土類、重希土類の混合物、例えばミッシュメタルやジウムのように安価なR原料を用いて高い磁気特性が得られ、かつCoの含有量も重量百分率で45%以下(原子%で50%以下)で十分であり、SmCo系磁石がSmを必須とし50~85重量%のCoを含有するのと比較すれば、Smを必須とせずかつCoを節約可能であり、温度特性はFe-B-R系磁石に比べて顕著に改善できた。

以上詳述の通り、本発明は、新規なFe-Co-B-R系磁気異方性焼結体から成る実用永久磁石を提供し、従来レベル以上の磁気特性をRとして必ずしもSmを用いることなくまたCoを多量に用いることなく実現したものである。本発明は、その実施の態様においてさらに従来磁石よりも優れた高保磁力、高エネルギー積を備え、と共に実質的に従来のフルニコ、R-Co系磁石に匹敵する温度特性を備えた実用高性能永久磁石を提供し、好適な態様として従来にない最高のエネルギー積をも実現したものである。加えて、Rとして

すると、本発明磁石はその保磁力が反転磁区の核発生によって決定される、いわゆるニュークリエーション型永久磁石である。なお、第1表に示す、他の試料(比較例を除く)はいずれも、第2図と同様な磁化曲線を示した。

前述の工程と同様にして製造した試料により、 $(82-x)$ Fe-10Co-8B-xNdの系においてxを0~40に変化させてNd量とBr, Ilcとの関係を探った。その結果を第3図に示す。さらに、 $(75-x)$ Fe-10Co-xB-15Ndの系においてxを0~35に変化させてB量とBr, Ilcとの関係を探り、その結果を第4図に示す。第3図、第4図からも本発明のR, Bの数値限定の理由が明らかである。

さらに、同様の工程により、Fe-Co-B-R四成分系において、一例として $(95-x-y)$ Fe-5Co-yB-xNdの系についてFe, B, Nd三成分を変化させて磁気特性を探り、その結果を $(BH)_{max}$ について第5図に示す。

本発明のFe-Co-B-R系永久磁石は、R

Nd, Pr等の軽希土類を希土類の中心として用いることができることにより、資源、価格、磁気特性いずれの点においても優れた永久磁石であり、工業利用性の極めて高いものである。またFe-B-R系磁石と対比してみると、Coの含有により実用上充分高いキュリー点を備え、応用範囲を拡げ実用的価値を高めている。

#### 4. 図面の簡単な説明

第1図は、 $(77-x)$ Fe-xCo-8B-15Nd系において、Co量(横軸原子%)とキュリー点との関係を示すグラフ。

第2図は、51Fe-20Co-8B-15Ndの磁石の室温における磁化曲線(初磁化曲線1, 減磁曲線2, 縦軸は磁化 $4\pi I$ (kG), 横軸は磁界H(kOe))。

第3図は、 $(82-x)$ Fe-10Co-8B-xNd系において、Nd量(横軸原子%)とIlc, Brとの関係を示すグラフ。

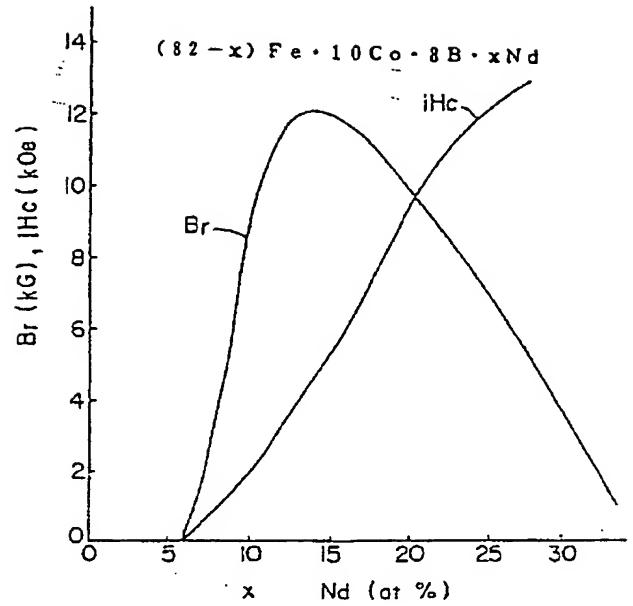
第4図は、 $(75-x)$ Fe-10Co-xB-15Nd系において、B量(横軸原子%)とIlc,

Brとの関係を示すグラフ、及び

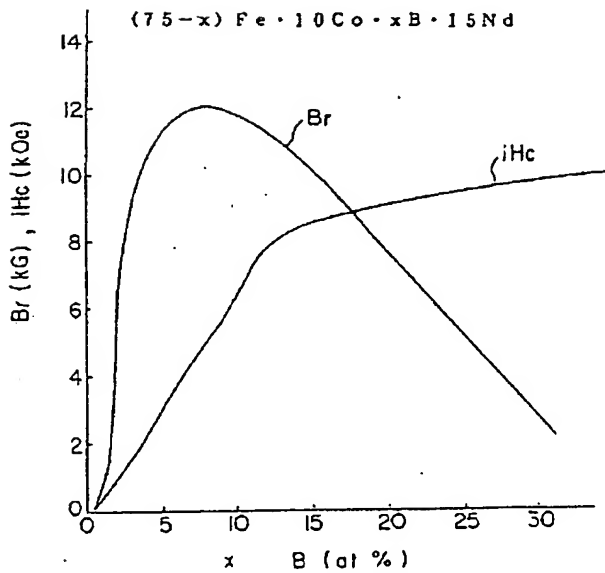
第 5 図は、 $Fe - 5Co - B - Nd$ 系において、 $(95-x-y)Fe - yB - xNd$ 三成分の組成と  $(BH)_{max}$  との関係を示す三成分系ダイヤグラム、を夫々示す。

出願人 住友特殊金属株式会社  
代理人 弁理士 加藤 朝 道

第 3 図



第 4 図



第 5 図

